

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 07-122414

(43)Date of publication of application : 12.05.1995

(51)Int.Cl.

H01F 1/053

B22F 1/00

H01F 1/08

H01F 41/02

(21)Application number : 06-109340 (71)Applicant : ISUZU MOTORS LTD

(22)Date of filing : 24.05.1994 (72)Inventor : OKUMURA EIJI
TAKEDA TOSHIKAZU
OGAWA MAKOTO
TAKITA SHIGEO
ISHIYAMA HIDEO
KATO MASAYUKI

(30)Priority

Priority number : 05216103 Priority date : 31.08.1993 Priority country : JP

(54) RARE EARTH PERMANENT MAGNET AND MANUFACTURE THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To increase the coercive force by adding Co-Dy alloy in capsuled particle state to the part around mother particles comprising Nd-Fe-B base amorphous quenched ribbon particles.

CONSTITUTION: Within rare earth permanent magnet, a diffused layer comprising an alloy containing heavy rare earth element in even width of 0.2-1.5 μ m is interposed between Nd-Fe-B base amorphous quenched ribbon particles. At this time, the permanent magnet is to be manufactured by crush-mixing Nd-Fe-B amorphous quenched ribbon particles in particle diameter of 20-200 μ m and Co-Dy alloy particles in particle diameter of 5-100 μ m to form compound capsuled particles and then entered into the sintering mold of a plasma sintering device so that the compound capsuled particles may be conduction-solidified at the temperature raising rate of 300° C/min up to 700° C while being pressurized at the pressure of 600kg/cm². Successively, this solid body is entered into the mold of a roller in vacuum state so that it may be rolled at the temperature raising rate of 200-300° C/min up to 800° C while being pressurized at the pressure of 0.4-1.2t/cm² for making it anisotropical.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision
of rejection]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-122414

(43) 公開日 平成7年(1995)5月12日

(51) Int. Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 1/053				
B 2 2 F 1/00	F			
H 0 1 F 1/08				

H 0 1 F 1/ 04 H
1/ 08 B

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 6 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平6-109340

(22) 出願日 平成6年(1994)5月24日

(31) 優先権主張番号 特願平5-216103

(32) 優先日 平5(1993)8月31日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000000170

いすゞ自動車株式会社

東京都品川区南大井6丁目26番1号

(72) 発明者 奥村 英二

神奈川県藤沢市土棚8番地 株式会社い

すゞ中央研究所内

(72) 発明者 竹田 敏和

神奈川県藤沢市土棚8番地 株式会社い

すゞ中央研究所内

(72) 発明者 小川 誠

神奈川県藤沢市土棚8番地 株式会社い

すゞ中央研究所内

(74) 代理人 弁理士 網谷 信雄

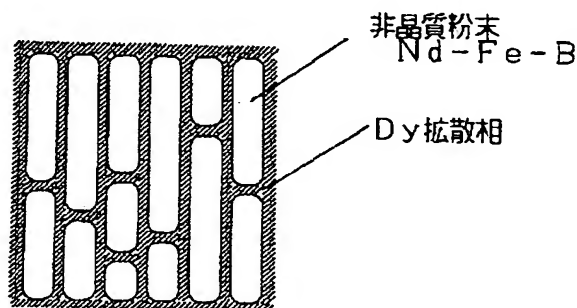
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 希土類永久磁石及びその製造方法

(57) 【要約】

【目的】 本発明の目的は保磁力及び成形性に優れた新規な希土類永久磁石及びその製造方法を提供することにある。

【構成】 本発明はNd-Fe-B系アモルファス急冷リボン粉末間に、重希土類元素を含む合金からなる拡散層が0.2~1.5μmの幅で均一に介在していることを特徴としている。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 Nd-Fe-B 系アモルファス急冷リボン粉末間に、重希土類元素を含む合金からなる拡散層が 0.2~1.5 μm の幅で均一に介在していることを特徴とする希土類永久磁石。

【請求項 2】 上記アモルファス急冷リボン粉末の粒径が、20~200 μm であることを特徴とする請求項 1 記載の希土類永久磁石。

【請求項 3】 上記重希土類元素を含む合金が、Co-Dy 合金であることを特徴とする請求項 1 記載の希土類永久磁石。

【請求項 4】 Nd-Fe-B 系希土類永久磁石の製造方法において、Nd-Fe-B 系アモルファス急冷リボン粉末からなる母粒子の周囲に、Co-Dy 合金粉末からなる子粒子を付着させて複合カプセル粉末を形成し、これを通電焼結して所定形状に成形固化した後、この固形体を熱処理して異方性化することを特徴とする希土類永久磁石の製造方法。

【請求項 5】 上記固形体を 200℃~300℃/min の昇温速度で、かつ 800℃ に達するまで熱処理することを特徴とする請求項 4 記載の希土類永久磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は希土類永久磁石に係り、特に保磁力及び成形性の向上を目的とした新規な希土類永久磁石及びその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 一般に、モータ、発電機、音響機器等に用いられている工業用永久磁石としては、アルニコ磁石、フェライト磁石の他に、ネオジウム鉄磁石に代表される希土類磁石がある。この希土類磁石は周知の通り、磁石原料中に希土類元素を混入したものであり、ヒステリシスループの減磁曲線（BHカーブ）で示される残留磁束密度（Br）、保磁力（Hc）、最大エネルギー積（BHmax）のいずれも大きく、優れた磁気特性を有しているため、現在最も普及しているフェライト磁石に代わって今後、工業用永久磁石の主流となりつつある。

【0003】そして、この希土類磁石の中でも特に優れた磁気特性を有している Fe（鉄）-Nd（ネオジウム）-B（ボロン）系永久磁石の製造方法の一つとして、Fe-Nd-B 系のアモルファス急冷リボン粉末を焼結する方法がある。これは、冷却されている回転ドラムの表面に、Fe-Nd-B の溶湯を吹き付けて急冷固化されたリボン状のアモルファス系粉末材料を通電焼結、例えばプラズマ焼結（PAS）して固形化した後、熱処理して磁場配向する方法であり、インゴット粉碎粉末材料を用いた一般的な焼結固化方法に比較して、焼結時間が短縮できること、アモルファス状態であるため磁場配向処理が容易なこと、結晶サイズを小さいまま固化

することができるため高い保磁力（iHc）が得られること等の優れた長所を有している。また、特開昭 63-6808 剛公報に開示されているように、このアモルファス系粉末材料に Dy（ジスプロシウム）、Ho（ホルミウム）、Tb（テルビウム）合金等の重希土類元素を添加することで保磁力がさらに向上することも知られている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】ところで、このようなアモルファス系粉末材料は等方性であるため、実用化のためには焼結後にさらに圧延による異方性化処理を行う必要がある。しかしながら、上記方法においてはプラズマ焼結された固形体をさらに 600~750℃ の高温状態を長時間保磁しながら圧延を行わなければならないため、固体内で材料の結晶成長が起ってしまう、この結果保磁力が大きく低下することがあった。そのため、低温状態で圧延することも考えられるが、この場合、材料の結晶成長は抑制されるが、結果として高い圧力が必要になるばかりでなく、固形体の表面や側面にマイクロクラックや割れが発生して成形性が悪くなるといった問題点があった。

【0005】そこで、本発明は上記の問題点を有効に解決するために案出されたものであり、その目的は保磁力及び成形性に優れた新規な希土類永久磁石及びその製造方法を提供するものである。

【0006】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために本発明は Nd-Fe-B 系アモルファス急冷リボン粉末間に、Co-Dy 合金からなる拡散層が 0.2~1.5 μm の幅で均一に介在させたものであり、具体的には Nd-Fe-B 系アモルファス急冷リボン粉末からなる母粒子の周囲に、Co-Dy 合金粉末からなる子粒子を付着させて複合カプセル粉末を形成し、これをプラズマ焼結して所定形状に成形固化した後、この固形体を短時間で高温熱処理するものである。

【0007】本発明において、Nd-Fe-B 系アモルファス急冷リボン粉末を用いたのは上述したように、磁場配向処理が容易なこと、結晶サイズを小さいまま固化することができるためである。また、このアモルファス急冷リボン粉末は微細なほど高い保磁力が得られるが、これを母粒子とする必要があることから、その粒径は 20~200 μm の範囲が好ましい。また、Co-Dy 合金粉末の粒径は、これが子粒子となることから、アモルファス急冷リボン粉末より小さい大きさ、好ましくは 5~100 μm の範囲であれば良い。尚、アモルファス急冷リボン粉末は冷却された回転ドラムに溶湯を吹き付ける急冷凝固法によって、また、Co-Dy 合金粉末はガスアトマイズ法などを用いれば容易に得ることができる。また、Nd-Fe-B 系の具体的な組成成分としては特に限定されないが、例えば Nd_{1-x}-Fe_x-B-CO

$\text{La}_{0.9}\text{-B}_{0.1}$ 、 $\text{Nd}_{0.9}\text{-Fe}_{0.9}\text{-B}_{0.1}$ が挙げられる。

【0008】次に、Co-Dy合金からなる拡散層の幅を0.2~1.5 μm と限定したのは、この範囲が最も大きな保磁力が得られるためである。すなわち、上述したように、Nd-Fe-B系材料にDy合金等の重希土類元素を添加することで、保磁力が向上することは知られていたが、この重希土類元素の添加量や磁石材料中の存在状態等と保磁力との関係については不明であった。そこで、本発明者らが鋭意研究した結果、本発明方法によって得られた希土類磁石は図1に示すように、リボン状の非晶質粉末間にDy拡散層が介在した状態となっているが、保磁力はこの拡散層の幅(厚み)に応じて大きく変化する、しかも、図2に示すように、保磁力はこの拡散層の幅が0.2から1.5 μm の範囲、特に0.4~0.8 μm の場合に最も大きくなることを見出したためである。そして、この拡散層の幅(厚み)は母粒子に付着させるCo-Dy合金粉末の添加量を調整することで容易に制御できることも判明し、この範囲の拡散層を得るためにはCo-Dy合金粉末をアモルファス急冷リボン粉末に対して1~20wt%の範囲、好ましくは5~10wt%の範囲で添加すればよい。

【0009】本発明では昇温速度が200~300 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で、上限温度800 $^{\circ}\text{C}$ で短時間に熱処理を終了するのが好ましい。すなわち、従来のような低温長時間の熱処理では高い圧力が必要となって成形性が悪くなり、また、800 $^{\circ}\text{C}$ 以下では良好な効果が得られず、反対に、それを超えると、材料の融点が一100 $^{\circ}\text{C}$ であることから、結晶成長が起ってしまい、保磁力(iHc)や残留磁束密度(Br)が著しく低下するためである。

【0010】また、Co-Dy合金粉末中のCoとDyの成分比率は、それぞれCo:1~7、Dy:9~3の範囲が最も良好な効果が得られる。この理由としては、Dy及びCoの融点がそれぞれ1407 $^{\circ}\text{C}$ 、1495 $^{\circ}\text{C}$ であり、それぞれ単独ではアモルファス急冷リボン粉末の固化温度域において流動性は示さないが、DyとCoを混合し、共晶点をもつようにその組成を上記範囲に設定すると、Dy-Co合金の融点が、アモルファス急冷リボン粉末の固化温度付近である700 $^{\circ}\text{C}$ 付近にまで下がることとなり、Dyをプラズマ焼結処理するだけで、これをアモルファス急冷リボン粉末表面に均一に介在した拡散層を形成させるためである。

【0011】また、母粒子となるアモルファス急冷リボン粉末を子粒子となるCo-Dy合金粉末でカプセル化する方法としては静電気付着法や機械衝撃法などの従来周知の技術をそのまま用いることができるが、特に本発明では、乳パチにて粉碎、混合するだけで容易に複合カプセル粉末を形成することができる。尚、本発明における焼結や圧延処理は、固形物への酸化や不純物混入を未然に防止するために真空中で行うことはいうまでもな

い。

【0012】

【作用】本発明は上述したように、カプセル粉末の状態でCo-Dy合金を添加することにより、アモルファス急冷リボン粉末の粒界にCo-Dy合金が均一に溶解拡散して拡散層を形成し、アモルファス急冷リボン粉末の結晶成長を抑制することで保磁力が向上する。また、Co-Dy合金の融点(700 $^{\circ}\text{C}$)以上に加熱することで著しく材料の粘性が低下し、圧延時のアモルファス急冷リボン粉末粒界のすべりエネルギーを低下させ、アモルファス急冷リボン粉末に過剰の応力が加わらない上に、200~300 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の昇温速度で、800 $^{\circ}\text{C}$ に達した時点で短時間に熱処理する方法であるため、従来のような低温長時間の熱処理のようなマイクロクラックが発生せず、また、仮に発生した場合も、このマイクロクラック内に溶解したCo-Dyが速やかに入り込んで、粒成長を抑制し、さらにこれを微細化する作用が働くため、成形性も大巾に向上する。尚、これに対し、従来法はすべりエネルギーが大きい上に長時間の熱処理が必要であったため、結晶粒に過剰の応力が加わってマイクロクラックが発生し、これが保磁力を大きく低下させる結晶成長を引き起していたものと考えられる。

【0013】

【実施例】以下、本発明の実施例を詳述する。

【0014】(実施例1) 先ず、粒径が20~200 μm のNd-Fe-B系アモルファス急冷リボン粉末と、粒径が5~100 μm で、かつCoとDyの成分比率が3:7のCo-Dy合金粉末を乳パチにて粉碎混合して複合カプセル粉末を形成した後、これを10 $^{-3}$ Torrの真空中に置かれたプラズマ焼結装置の焼結型内に入れ、さらに600Kg/cm 2 で加圧しつつ、300 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の昇温速度で700 $^{\circ}\text{C}$ に達するまで通電固化した。次に、この固形体を同じく真空中に配置された圧延装置の型内に入れ、0.4~1.2t/cm 2 で加圧しつつ、250 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の昇温速度で800 $^{\circ}\text{C}$ に達するまで圧延して異方性化を行い、その後、この圧延体の磁気特性及び外観を測定した。

【0015】(比較例1) 実施例1で得られた固形体を同じく真空中に配置された圧延装置の型内に入れ、0.4~1.2t/cm 2 で加圧しつつ、120 $^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の昇温速度で700 $^{\circ}\text{C}$ に達するまで圧延して異方性化を行い、その後、この圧延体の磁気特性及び外観を測定した。

【0016】(比較例2) Co-Dy合金を全く添加しないNd-Fe-B系アモルファス急冷リボン粉末を用い、実施例1と同様な製法で圧延体を形成し、この圧延体の磁気特性及び外観を測定した。

【0017】

【表1】

磁気特性	Br(KG)	iHc(kOe)	bHc(kOe)	BHmax(MGOe)	成形性 (外観)
実施例	9.3	26以上 (測定不可)	8.8	21.1	良好
比較例1	8.5	19.3	7.6	16.9	不良
比較例2	7.7	8.3	—	13.8	不良

【0018】この結果、表1に示すように、速い昇温速度及び高い温度で圧延した実施例1では、その磁気特性はいずれも高い数値を示し、なかでも保磁力(iHc)は著しく向上していることが判る。また、この圧延体の外観を調べたところ、割れやクラックが全く発生せず良好な成形性を示した。

【0019】これに対し、遅い昇温速度及び800℃以下で圧延した比較例1では磁気特性が不十分であり、また、圧延体の表面や側面に多数のマイクロクラックが発生した。一方、Co-Dy合金を全く添加しない比較例2では、実施例1と同様な製法を用いたにも拘わらず、

磁気特性及び成形性も悪かった。
【0020】(実施例2) $Nd_{1.1} - Fe_{88.9} - B_{0.1}$ からなる、長さ約200 μm 、幅約20 μm のアモルファス急冷リボン粉末に粒径5~100 μm のCo, -Dy₁₂粉をそれぞれ2、5、10、20wt%添加し、これらを乳鉢にて混合して4種類のカプセル粉末を形成した後、これらカプセル粉末25gをそれぞれ内径20 ϕ のカーボンキャビティ内に充填してこれをプラズマ焼結装置にセットし、真空雰囲気(10⁻³Torr)で圧力600Kg/cm²、昇温速度300℃/min、固化温度700℃の条件で通電固化を行い、外径20 ϕ 、厚さ約10mmの4種類の固化体を形成した。次に、これら固化体をそれぞれ内径30 ϕ のカーボンモールドの中央にセットし、真空雰囲気中(10⁻³Torr)で圧力500Kg/cm²、昇温速度250℃/min、最高温度800℃の条件で通電し、異方性化処理を行い、試料となる外径30 ϕ 、厚さ約4.5mmの4種類の異方性磁石を作製した。

10 【0021】(実施例3) $Nd_{1.1} - Fe_{88.9} - Co_{1.1} - B_{0.1}$ からなる、長さ約200 μm 、幅約20 μm のアモルファス急冷リボン粉末に粒径5~100 μm のCo, -Dy₁₂粉をそれぞれ2、5、10、20wt%添加し、これらを乳鉢にて混合して4種類のカプセル粉末を形成した後、実施例1と同様な処理によって4種類の異方性磁石を作製した。

【0022】(比較例3) 実施例2で用いたアモルファス急冷リボン粉末になにも添加せずに、そのまま実施例1と同様な焼結、異方性化を行った試料を作製した。

20 【0023】(比較例4) 実施例3で用いたアモルファス急冷リボン粉末になにも添加せずに、そのまま実施例1と同様な焼結、異方性化を行った試料を作製した。

【0024】(比較例5) 実施例2で用いたアモルファス急冷リボン粉末に粒径5~100 μm のCo, -Dy₁₂粉を5wt%添加し、これらを乳鉢にて混合してカプセル粉末を形成した後、実施例1と同様な焼結、拡散処理温度700℃で異方性化を行った試料を作製した。

30 (比較例6) 実施例3で用いたアモルファス急冷リボン粉末に粒径5~100 μm のCo, -Dy₁₂粉を5wt%添加し、これらを乳鉢にて混合してカプセル粉末を形成した後、実施例1と同様な焼結、拡散処理温度900℃で異方性化を行った試料を作製した。

【0025】そして、これら実施例2、3及び比較例3~6で得られた各試料の保磁力(iHc)と各試料中のDy拡散層の厚さ(μm)を測定し、その結果を表2に示す。

【0026】

【表2】

	Co-Dy添加量 (wt%)	拡散処理温度 (℃)	保磁力 <i>i</i> H _c (kOe)	拡散相 μm
実施例2	2	800	13.4	0.1
	5	800	20.5	0.5
	10	800	28.0	0.8
	20	800	17.3	1.2
実施例3	2	800	14.4	0.1
	5	800	18.0	0.4
	10	800	19.4	0.6
	20	800	16.5	1.5
比較例3	0	800	14.8	0.0
比較例4	0	800	14.8	0.0
比較例5	5	700	14.8	0.1
比較例6	5	900	15.0	2.1

【0027】この結果、表1及び図2に示すように、Co-Dyの添加量と拡散層の幅が比例し、しかもこの拡散層の幅によって保磁力が変化することがわかり、特に実施例2及び3に示すように、Co-Dyの添加量が10wt%、すなわち、拡散層の幅が0.8μmの場合の時に最も高い保磁力を示した。これに対し、Co-Dyを全く添加しない比較例3及び4では当然のことながら拡散層はみられず、保磁力も低かった。また、拡散処理の設定温度を上昇、降下させた比較例5及び6では拡散層の幅が極端となり、従って保磁力も低かった。

【0028】

【発明の効果】以上要するに本発明によれば、①結晶の成長を抑制し、アモルファス急冷リボン粉末の微細結晶状態を保磁しつつ異方性化処理することができるため、*

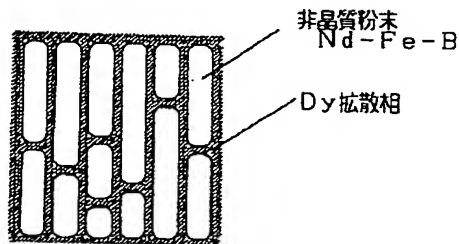
*保磁力の低下が防止されるだけでなく、マイクロクラックの発生箇所及びアモルファス急冷リボン粒界にCo-Dyが拡散層が形成され、保磁力を向上させることができる。②短時間で高温熱処理するため、材料の粘性が低下し、成形性が向上する。③保磁力が向上することによって磁石の耐熱性も向上するため、高温部材への適用も可能となり、実用性が向上する等といった優れた効果を有する。

【図面の簡単な説明】

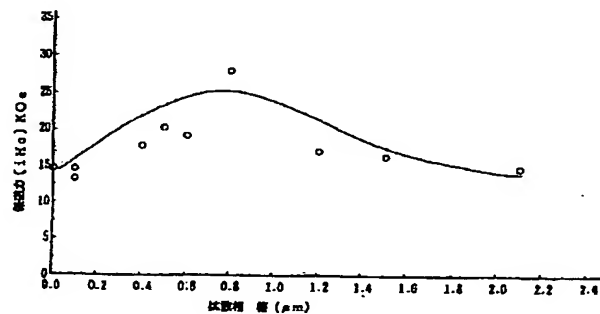
30 【図1】本発明の希土類磁石の構造を示す概念図である。

【図2】拡散層の幅と保磁力の関係を示すグラフ図である。

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁶	識別記号	弁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 F 41/02		G 8019-5E		

(72)発明者 滝田 茂生
神奈川県藤沢市土棚 8 番地 株式会社い
すゞ中央研究所内

(72)発明者 石山 日出夫
神奈川県藤沢市土棚 8 番地 株式会社い
すゞ中央研究所内

(72)発明者 加藤 雅之
神奈川県藤沢市土棚 8 番地 株式会社い
すゞ中央研究所内